

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2005 年 9 月 29 日 (29.09.2005)

PCT

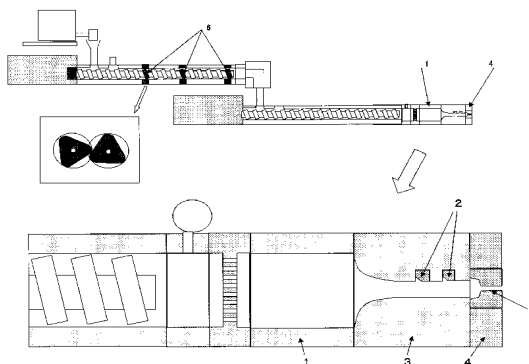
(10) 国際公開番号
WO 2005/090032 A1

- (51) 国際特許分類⁷: B28B 3/22, H01L 23/12, 23/15, 23/36, H05K 1/03, 7/20
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2005/004815
- (22) 国際出願日: 2005 年 3 月 17 日 (17.03.2005)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願2004-079787 2004 年 3 月 19 日 (19.03.2004) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 電気化学工業株式会社 (DENKI KAGAKU KOGYO KABUSHIKI KAISHA) [JP/JP]; 〒1008455 東京都千代田区有楽町一丁目 4 番 1 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてののみ): 寺尾 亮 (TERAO, Akira) [JP/JP]; 〒8368510 福岡県大牟田市新開町 1 電気化学工業株式会社 大牟田工場内 Fukuoka (JP). 福田 誠 (FUKUDA, Makoto) [JP/JP]; 〒8368510 福岡県大牟田市新開町 1 電気化学工業株式会社 大牟田工場内 Fukuoka (JP). 吉野 信行 (YOSHINO, Nobuyuki) [JP/JP]; 〒8368510 福岡県大牟田市新開町 1 電気化学工業株式会社 大牟田工場内 Fukuoka (JP).
- (74) 代理人: 泉名 謙治, 外 (SENMYO, Kenji et al.); 〒1010042 東京都千代田区神田東松下町 3 8 番地 鳥本 鋼業ビル Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR,

[続葉有]

(54) Title: PROCESS FOR PRODUCING CERAMIC SHEET, CERAMIC SUBSTRATE UTILIZING THE SAME AND USE THEREOF

(54) 発明の名称: セラミックシートの製造方法、それを用いたセラミックス基板及びその用途



(57) Abstract: It is intended to solve the problem of the conventional process for producing a ceramic sheet through extrusion molding such that it is a production process of prolonged lead time requiring raw material granulation and homogenization operations and when the homogenization of kneaded clay is unsatisfactory, a density irregularity of green sheet would occur with the result that the ceramic sintered compact after sintering operation would suffer deformation and warpage to thereby cause failures in circuit pattern printing and joining between metal circuit board and heat sink. There is provided a process for producing a ceramic sheet, comprising use of an extrusion molding machine combining a twin screw extruder of powerful kneading capability with a single screw extruder of molding stability, so that a quality equivalent to or superior to that of the prior art can be obtained and that high production efficiency can be attained. Further, there is provided a ceramic substrate utilizing the same.

(57) 要約: 原料の顆粒化工程及び均一化工程を必要とするリードタイムの長い生産方法であり、練土の均一化が不十分であると、グリーンシートの密度ムラが生じ、焼成後のセラミックス焼結体に変形や反りが発生するため、回路パターン印刷不良や金属回路板・放熱板との接合不良が生じるという、従来の押出成形によるセラミックシートの製造方法の問題を解決する。強混練性能を有した2軸押出機と、成形安定性を有した1軸成形機を組み合わせた押出成形機を使用することにより、従来と同等もしくはそれ以上の品質が得られ、しかも生

[続葉有]

WO 2005/090032 A1



BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告書

(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE,

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

明 細 書

セラミックシートの製造方法、それを用いたセラミックス基板及びその用途 技術分野

[0001] 本発明は、セラミックシートの製造方法、それを用いたセラミックス基板及びその用途に関する。

背景技術

[0002] 従来、回路基板は、半導体搭載用セラミックス基板の主面に導電性を有する金属回路をロウ材で接合し、金属回路の所定位置に半導体素子を搭載したものが用いられている。回路基板の高信頼性を保つには、半導体素子が発生する熱を放熱し、半導体素子の温度が過度に上昇しないようにすることが必要であり、セラミックス基板には、電気絶縁性に加えて、優れた放熱特性が要求される。近年、回路基板の小型化、パワーモジュールの高出力化が進む中、小型軽量化モジュールに関して、電気絶縁性が高く、高熱伝導性を有する窒化アルミニウム(以下、AlNと記載)焼結体を用いるセラミックス基板、並びにAlN基板の主面に金属回路を形成したセラミックス回路基板が注目されている。

[0003] セラミックス基板となるセラミックス焼結体は、一般に以下の方法で製造される。即ち、セラミックス粉末に焼結助剤、有機バインダー、可塑剤、分散剤、離型剤等の添加剤を適量混合し、それを押出成形やテープ成形によって薄板状又はシート状に成形する。一方、厚板状又は大型形状の場合は、押出成形やプレスにより成形される(本発明では、厚さ1mm未満を薄板、それ以上を厚板とする)。次いで、成形体を空气中、又は窒素等の不活性ガス雰囲気中で、450〜650℃に加熱して有機バインダーを除去した後(脱脂工程)、窒素等の非酸化性雰囲気中で、1600〜1900℃で0.5〜10時間保持すること(焼成工程)によって製造される。

[0004] 一般に、押出成形法を用いることで、成形厚みの制限を無くことができ、薄板及び厚板のセラミックシート成形が可能である。まず、万能混合機、ライカイ機、ミキサー、振動篩機等を用いて、予めオレイン酸処理したセラミックス粉末と焼結助剤と有機粉末バインダーからなる混合粉末を調製する。この混合粉末に、水、有機液体バイン

ダー、離型剤及び可塑剤等からなる混合液体を噴霧し、万能混合機、ライカイ機、ミキサー、振動篩機等を用いて顆粒状の湿粉原料を作製する(顆粒化工程)。次に、この湿粉からなるオレイン酸処理したAlN粉末とバインダー水溶液を馴染ませるため、2〜3日間低温にて放置する(寝かせ工程)。この原料を混練機の原料供給口に投入し、練土を調製した後(混練工程)、さらに、2〜3日間低温にて放置し、練土粘度を低粘度化させる。この練土をダイスが設置された1軸押出成型機の原料供給部に投入し、厚板状又はシート状に成形する(特許文献1、特許文献2参照)。

特許文献1:特開平2-83265号公報

特許文献2:特開平9-177113号公報

発明の開示

発明が解決しようとする課題

- [0005] 上記従来の製造方法は、原料の顆粒化(顆粒工程)及び練土の均一化(混練及び寝かせ工程)を必要とするリードタイムの長い生産方式である。さらに、この練土の均一化が不十分であると、グリーンシートの密度ムラが生じ、焼成後のセラミックス焼結体に変形するという課題がある。本発明の目的は、従来と同等もしくはそれ以上の品質が得られ、しかも生産効率の良好なセラミックシートの製造方法、それを用いたセラミックス基板、及びその用途を提供することである。

課題を解決するための手段

- [0006] (1) 2軸押出機の吐出口と1軸成形機の原料供給口を連結させた押出成形機を用いて、厚みが1〜10mmのセラミックシートを成形することを特徴とするセラミックシートの製造方法。
- (2) 2軸押出機の吐出口と1軸成形機の原料供給口の連結部分を減圧することを特徴とする上記(1)に記載のセラミックシートの製造方法。
- (3) 2軸押出機の吐出口と1軸成形機の原料供給口の連結部分の真空度が、1332・2Pa以下であることを特徴とする上記(2)に記載のセラミックシートの製造方法。
- (4) 2軸押出機及び1軸成形機から吐出される吐出物の温度が5〜15℃であることを特徴とする上記(1)〜(3)のいずれか1項に記載のセラミックシートの製造方法。
- (5) 2軸押出機の混練部が、2軸押出機の30〜70体積%を占めることを特徴とする

上記(1)～(4)のいずれか一項に記載のセラミックシートの製造方法。

(6) 2軸押出機の混練部が、耐摩耗性材料から構成されていることを特徴とする上記(5)に記載のセラミックシートの製造方法。

(7) 2軸押出機のスクリーウの中間部及び／又は先端部にスクリーウを保持する構造を有することを特徴とする上記(1)～(6)のいずれか一項に記載のセラミックシートの製造方法。

(8) 1軸成形機に缶の直径以上の長さを有する均圧缶を設置したことを特徴とする上記(1)～(7)のうちいずれか一項に記載のセラミックシートの製造方法。

(9) 1軸成形機の吐出口に長さ5mm以上の平坦部を有する口金を設置したことを特徴とする上記(1)～(8)のいずれか一項に記載のセラミックシートの製造方法。

(10) 1軸成形機の吐出口の口金部と均圧缶の間に邪魔板を設置したことを特徴とする上記(1)～(9)のいずれか一項に記載のセラミックシートの製造方法。

(11) (a) セラミックス粉末、焼結助剤及び有機バインダー粉末からなる混合粉末を2軸押出機の粉末供給部より供給し、(b) 液状の有機バインダー、離型剤及び可塑剤からなる液体を2軸押出機の液体供給部より供給し、(c) 2軸押出機内の混練部にて混合粉末と液体を混練し、(d) シートダイスを取付けた1軸押出機によりシート成形を行うことを特徴とする上記(1)～(10)のいずれか一項に記載のセラミックシートの製造方法。

(12) セラミックス粉末が窒化物セラミックス、焼結助剤粉末が希土類酸化物、有機バインダー粉末がセルロース系又はアクリル系バインダー、液状の有機バインダーがアクリル系バインダーであることを特徴とする上記(11)に記載のセラミックシートの製造方法。

(13) 窒化物セラミックスが窒化アルミニウムであり、シートの見掛け密度が $2.5\text{g}/\text{cm}^3$ 以上であることを特徴とする上記(12)に記載のセラミックシートの製造方法。

(14) シート強度が 1.47MPa 以上であることを特徴とする上記(1)～(13)のいずれか一項に記載のセラミックシートの製造方法。

(15) 上記(1)～(14)のいずれか一項に記載の方法により製造されたセラミックシートに、脱脂及び焼結処理を施してなるセラミックス基板。

(16) ボイド率が3体積%以下であることを特徴とする上記(15)に記載のセラミックス基板。

(17) 上記(15)又は(16)に記載のセラミックス基板の一主面に金属回路を形成し、他の一主面に放熱板を接合してなるモジュール用セラミックス回路基板。

(18) 10pC以上の部分放電開始電圧が5kV以上であることを特徴とする上記(17)に記載のモジュール用セラミックス回路基板。

(19) 上記(17)又は(18)に記載のセラミックス回路基板を用いてなるモジュール。

発明の効果

[0007] 本発明により、従来法と同等もしくはそれ以上の品質が得られ、しかも生産効率の良好なセラミックシートの製造方法が提供され、さらに、セラミックス基板の製造、並びに、モジュールへの適用が可能である。

図面の簡単な説明

[0008] [図1]本発明に係る押出成形機の一実施の形態を示す説明図。

[図2]本発明に係る2軸押出機及び1軸成形機のスクリーの一実施の形態を示す説明図。

[図3]本発明に係る押出成形機の一実施の形態を示す説明図。

[図4]本発明に係るセラミック回路基板の一実施の形態を示す説明図。

符号の説明

[0009] [図1]

- 1 粉末供給口
- 2 液体供給口
- 3 2軸押出機
- 4 ベント口
- 5 スtrandダイス
- 6 真空室
- 7 ニーダー
- 8 シートダイス
- 9 1軸成形機

[図2]

- 1 混練スクリュー
- 2 搬送スクリュー

[図3]

- 1 均圧缶
- 2 邪魔板
- 3 成形ダイス(冷却機能付き)
- 4 口金
- 5 平坦部
- 6 軸保持スクリュー

[図4]

- 1 回路側金属板
- 2 放熱側金属板
- 3 AlN基板

発明を実施するための最良の形態

[0010] 本発明者は、セラミックスシートを製造するため、ドクターブレード法、押し出し成型法、乾式プレス法、射出成型法、スリップキャスト法について検討した。

乾式プレス法及び射出成型法は、バインダー量が多くなるため焼成時の収縮率が大きくなり、寸法精度が取れず、焼結体を研磨加工して放熱板とする必要がある。スリップキャスト法は、少ロットの異形品向きで量産性に劣り、厚みが厚い成形体は幅方向及び流れ方向に厚みムラが生じやすい。

[0011] ドクターブレード法によれば、厚み0.5～1mmの成型品は可能であるが、厚みが1mm程度を越えると厚みムラが大きくなり、特に端部と中心部の厚み差が40 μ m以上になることもあり、大きな反りを生じるようになる。更に、厚みの厚いものは、シート成型後に有機溶剤を乾燥・除去する際、蒸発する有機溶剤によって表面が荒れたりピンホールが発生し、放熱板としては不適となる。

[0012] これに対し、押出成型法は、ダイスのクリアランスを大きくするだけで容易に厚みの厚いシートを成形することができ、しかも成形圧力を5～10MPaと高くすることができ

るため、成形体密度を上げることが可能で、焼成時の寸法精度が良好である。

[0013] 本発明に係る、2軸押出機と1軸押出機を組合せた押出成形機を図1に示す。

[0014] 2軸押出機の混練部は、押出機の仕様に応じて適宜決められるが、2軸押出機の30〜70体積%を占めるのが一般的である。ここで、Dはスクリー径、Lはスクリー長さである。混練部が30体積%未満であると、混練不足が生じてセラミックスシートの密度バラツキを誘発する場合があります、一方、70体積%を超えると、過剰混練により練土の発熱が著しくなり、配合ズレや水分蒸発に伴う流動性の低下が生じ、安定した品質のシートが得られない場合がある。2軸押出機のスクリー構成に関して特に制限は無いが、練土の均一混練性を考慮して選択することが好ましい。

[0015] 2軸押出機の混練部は、混練する材料、組成等により適宜決められるが、耐摩耗性材料から構成されることが好ましい。一般に、セラミックスは硬いため、混練時にスクリーが摩耗し、製品に悪影響を及ぼす場合がある。スクリーやバレルが摩耗しやすい金属で構成されていると、導電性の異物が製品中に混入する結果、製品の絶縁特性の低下を招く場合がある。耐摩耗性材料は特に限定されないが、例えば、SUS440又はセラミックスコーティング材料等が挙げられる。

[0016] 二軸押出機のスクリーの間中部及び／又は先端部にスクリーを保持する構造を有することが好ましい。一般に、二軸押出機は、スクリーの根元のみを保持する構造であるが、硬いセラミックスの練土を混練する場合、スクリーの先端部とバレル、又はスクリー同士が擦れ、混練時に摩耗して製品に混入するおそれがある。このため、例えばスクリーの間中部及び／又は先端部に図2に示したような保持構造を設けることにより、スクリーの先端部とバレル又はスクリー同士の摩擦を抑えることが出来る。

[0017] スクリュー回転数は、スクリー構成に応じて適宜決められるが、50〜200rpmが一般的である。回転数が50rpm未満では所望の吐出量が得られないため、生産性が低下する場合があります、一方、200rpmを超えると練土の発熱が著しくなり、バインダー溶液の水分蒸発に伴う流動性の低下が生じるため、安定したシート品質が得られない場合がある。2軸押出機の混練により練土中に包括された気泡を消滅させるために、混練部からストランドダイス間で真空引きを行う。このとき、真空度は絶対圧力表示に

て1332. 2Pa以下の真空雰囲気中に保たれる。2軸押出機は冷却用チラーユニットに接続され、2軸押出機からの吐出物温度は5〜15℃に調節される。

[0018] 本発明に係る2軸押出機の特徴は、(1)2軸スクリー間の噛み合い部において、1軸成形機よりも高いせん断応力を負荷でき、短時間で均一に混練された練土が得られる。(2)2軸スクリーは複数のパーツからなり、材料に応じて組み替えられるため混練の自由度が大きく、シート流れ方向とシート幅方向の密度バラツキを低減させることが可能である。さらに、焼結してセラミックス基板とする際は、押出方向に依存しない等方的な収縮性能を発現することから、セラミックス基板の寸法及び変形不良を低減させることができる。

[0019] 練土の成分が均一で、良好な成形性が得られる場合の粘度は、降下式フローテスターでせん断応力を0. 3MPaとした場合、2000〜3000Pa・secであり、シート断面の輪郭形状はフラットとなる。粘度が2000Pa・sec未満であると、シート幅方向において厚みムラが発生し、焼成後のセラミック基板の寸法不良や変形が生じる場合がある。一方、粘度が3000Pa・secを超えると、シート断面の輪郭形状はフラットになるが、シート表面の流れ方向にフローマークが著しく現れるため、焼成後のセラミックス基板表面の外観が損なわれる場合がある。

[0020] 1軸成形機のスクリー径D及びスクリー長さLに関して特に制約は無いが、1軸成形機のスクリー径Dは2軸押出機以上にすることが好ましい。1軸成形機の回転数は吐出量に比例するため、30〜100rpmが好ましい。回転数が30rpm未満では、所望の吐出量が得られず生産性が低下する。一方、100rpmを超えると練土の発熱が著しくなり、溶液中の水分蒸発に伴う流動性の低下が生じるため、安定した品質のシートが得られない場合がある。1軸成形機の混練部は、2軸押出機にて十分混練されているため不要である。1軸成形機は冷却用チラーユニットに接続され、1軸成形機からの吐出物温度は5〜15℃に調節される。

[0021] 2軸押出機の吐出口と1軸成形機の原料供給部の接続部は図1の様に設置される。この箱状容器(真空室)は、材質に制限はないが透明な容器であり、高真空下でも破損しないことが必要である。練土の表面に気泡が混入し密度低下を起こさぬよう、容器内は絶対圧力表示にて1332. 2Pa以下の真空度に保たれる。2軸押出機及び

1軸成形機と、容器の界面は真空漏れが生じないように、樹脂やゴムパッキン等のシーリング材が用いられる。2軸押出機の吐出口から吐出された練土は、その直下の1軸成形機の練土供給口に設置されたニーダーにより、1軸成形機内に搬送される。

[0022] 本発明に係る1軸成形機の特徴は、原料供給系に起因する圧力変動が2軸押出機よりも小さく、2軸押出機のシート流れ方向の厚みバラツキが $R > 5 \mu\text{m}$ なのに対し、1軸成形機では $R \leq 5 \mu\text{m}$ と吐出安定性に優れる。シート流れ方向の厚みバラツキが $R > 5 \mu\text{m}$ では、焼成後のセラミック基板幅方向の反り量が $80 \mu\text{m}$ 以上となるため、金属回路板側及び金属放熱板側との接合に不具合を発生させる場合がある。

[0023] 本発明に係る1軸成形機には、図3に示したような均圧缶、吐出口に長さ5mm以上の平坦部を有する口金及び邪魔板を設置することが好ましい。

[0024] 均圧缶は、缶の直径(D)以上の長さ(L)を有することが望ましい($L/D \geq 1$)。均圧缶の長さが、缶の直径より短くなると、2軸押出機の脈動の影響を受けて、吐出口でシートの厚み変動し、安定した厚みのシートを得ることが出来ない。また、吐出口の平坦部の長さは、5mm以上であることが好ましい。長さが5mm未満であると、平滑なシートが得られない場合がある。また、練土の流れを制御するために、均圧缶と吐出口の口金部の間に、邪魔板を設けることが好ましい。邪魔板で流れを制御することにより、より均一なシートを作製することが可能となる。

[0025] 本発明において、2軸押出機と1軸成形機を組み合わせた理由は、両機の欠点を補い、優れた特徴を活かすためである。2軸押出機の原料供給部は図1に示す通り、粉末と液体用の2箇所からなり、粉末及び液体供給はウエイトロス式の粉末フィーダーを用い、液体供給部へは吐出脈動の少ないウエイトロス式モノポンプあるいはウエイトロス式チューブポンプ等を用いて原料供給を行うことが好ましい。ここで重要なのは、粉末及び液体のフィードバラツキを $|\pm R\%| \leq 1$ 以内に制御し、且つ粉末フィーダーと液体添加ポンプの吐出を同調化させることである。ここで、 $\pm R\%$ は(1)及び(2)式から算出した。

[0026] [数1]

$$R = \max(x_i) - \min(x_i) \quad \text{式(1)}$$

ここで、 X_i は*i*回測定したときの吐出量である。

[0027] [数2]

$$\pm R\% = \frac{\left(\frac{R}{\bar{x}_i} \times 100 \right)}{2} \quad \text{式(2)}$$

ここで、

\bar{x}_i

は吐出量の平均値である。

[0028] バラツキが $|\pm R\%| \leq 1$ を外れると、粉末と液体の配合比率がズレ、練土が均一成分とならないため、グリーンシートの密度バラツキが生じることから、焼成後のセラミックス基板に著しい変形が生じる場合がある。

[0029] 本発明に係るAlN粉末は、直接窒化法、アルミナ還元法等の公知の方法で製造された粉末が使用できるが、酸素量3質量%以下、平均粒径5 μ m以下のものを用い、加水分解を防止するためにステアリン酸、オレイン酸、リン酸等で表面処理することが好ましい。特に、表面処理剤はオレイン酸が好ましく、その使用割合はAlN粉末100質量部に対して、0.5〜3質量部が好ましい。3質量部を超えると、オレイン酸の撥水作用により練土の流動性が低下し、成形性が損なわれる場合がある。

[0030] 本発明に係る焼結助剤は、希土類金属、アルカリ土類、及びアルミニウム酸化物、フッ化物、塩化物、硝酸塩、硫酸塩等が使用可能である。中でも、イットリウム酸化物等の希土類酸化物を助剤とし、これとAlN粉末の表面酸化膜であるアルミニウム酸化物との液相反応により、AlNの焼結を促進させることが一般的である。本発明では、希土類酸化物の他に、さらにアルミニウム酸化物を併用し、焼成温度を低下させることはより好ましい。焼結助剤の使用量は、セラミックス粉末100質量部に対して1〜5質量部が好ましい。1質量部未満であったり、或いは、5質量部を超えると、焼結しにくくなり、高密度な焼結体を得られない場合がある。アルミニウム酸化物の使用量は、セラミックス粉末100質量部に対して1〜5質量部が好ましい。1質量部未満であったり、或いは、5質量部を超えると、AlN基板の熱伝導率が低下する場合がある。

- [0031] 本発明に係る液状の有機バインダーは特に限定されないが、アクリル酸エステル、メタクリル酸エステル、アクリル酸、及びメタクリル酸からなる群より選ばれた一種又は二種以上を重合してなるポリマーを含む有機バインダーを用いることが好ましい。この有機液体バインダーを用いる理由は、窒素等の不活性ガス雰囲気中の脱脂処理にて、他のバインダーよりも熱分解性が良く、残留炭素分の制御を容易に行うことができるからである。酸化雰囲気中で脱脂処理すると、AlN脱脂体中の酸素量が増加し、焼結の際にAlN格子内に酸素が固溶してAlN焼結体の熱伝導率を低下させる場合がある。上記ポリマーのガラス転移温度は、 $-50\sim 0^{\circ}\text{C}$ であることが好ましい。ポリマーのガラス転移温度が -50°C より低いと、十分な成形体強度が得られず、成形が困難となる場合があり、一方、ガラス転移温度が 0°C より高いと成形体が硬く、脆いものとなり、割れが発生しやすくなる場合がある。
- [0032] 液体の有機バインダーの添加割合は、セラミックス粉末に対して外割配合で0.5〜30質量%が好ましく、1〜10質量%がより好ましい。0.5質量%より少ないと、十分な成形体強度が得られず、割れを生じる場合があり、一方、30質量%を超えると、脱脂処理に多大な時間がかかる上に、脱脂体中の残留炭素量が多いため、焼結体基板に色むらが生じる場合がある。
- [0033] 本発明に係る有機バインダー粉末は特に限定されないが、可塑性及び界面活性効果を有するメチルセルロース系あるいはアクリル系等の使用が可能である。有機バインダー粉末の使用量は、セラミックス粉末100質量部に対して1〜5質量部が好ましい。1質量部より少ないと、十分な成形体強度が得られず、割れを生じる場合がある。一方、5質量部を超えると、脱脂時のバインダー除去の際に成形体密度が低下するため、焼結時の収縮率が大きくなり、寸法不良や変形を生じる場合がある。
- [0034] 本発明において、上記成形体の加熱脱脂処理後の残留炭素分は、2.0質量%以下が好ましい。残留炭素分が2.0質量%を超えると、焼結を阻害して緻密な焼結体を得られなくなる場合がある。
- [0035] 本発明に係る可塑剤としては、精製グリセリン、グリセリントリオレート、ジエチレングリコール等が使用可能であり、その使用量は、セラミックス粉末100質量部に対して2〜5質量部が好ましい。2質量部未満であると成形シートの柔軟性が不十分のため、

プレス成形時に成形体が脆くなるため、シートへ亀裂が入りやすくなる。一方、5質量部を超えると練土粘度が低下し、シート形状の保持が困難になるため、シート幅方向の厚みムラを生じる場合がある。

[0036] 本発明に係る離型剤は特別に限定されないが、ステアリン酸系やシリコン系等が使用可能であり、その使用量はセラミックス粉末100質量部に対して2〜5質量部が好ましい。2質量部未満であると2軸押出機と1軸成形機間に設置された練土供給ローダーに付着し、練土供給に支障をきたして生産性を低下させるだけでなく、練土性状の劣化に起因したシート厚みムラが生じる場合がある。一方、5質量部を超えると練土粘度が低下し、シート形状の保持が困難になるため、シート幅方向の厚みムラが生じる場合がある。

[0037] 本発明では、必要に応じて、さらに分散剤を配合することも可能である。

[0038] 本発明に係る溶媒としては、エタノールやトルエン等の使用が挙げられるが、地球環境への配慮及び防爆設備対応を考慮して、イオン交換水又は純水を使用するのが一般的である。使用量は、セラミックス粉末100質量部に対して1〜15質量部が好ましい。1質量部未満だと練土粘度の流動性が悪いため、シート成形に支障をきたす場合がある。一方、15質量部を超えると、練土粘度が低下し、シート形状の保持が困難になるため、シート幅方向の厚みムラが生じる場合がある。

[0039] 本発明の成形機を用いることにより、セラミックシートの見掛け密度が $2.5\text{g}/\text{cm}^3$ 以上にすることが可能である。これにより、焼成後のAlN焼結体において収縮率を約12%以下にすることが出来、焼成時の収縮に伴う寸法不良や変形不良が低減できる。セラミックシートの見掛け密度が $2.5\text{g}/\text{cm}^3$ 未満だと収縮率が大きく、寸法不良や変形不良が発生し易い傾向がある。

[0040] 本発明に係るセラミックシートの強度は 1.47MPa 以上であることが好ましい。シート強度が 1.47MPa 未満であると、シートを金型で所望の形状に打ち抜いた際、シートが契れたり、シートにクラックが入り、生産性が低下したり、製品の絶縁性に悪影響を及ぼす場合がある。このようにして作製されたシートの処理方法は特に限定されないが、窒素ガス又は空気中等の非酸化性雰囲気又は酸化性雰囲気下、 $350\sim 700^\circ\text{C}$ で1〜10時間熱処理を行って有機結合剤を除去(脱脂)した後、窒化硼素製、黒鉛

製又は窒化アルミニウム製等の容器に収納し、窒素、アルゴン、アンモニア、水素ガス中等の非酸化性雰囲気下、1450〜1800℃で焼結されるのが一般的である。

[0041] セラミックス焼結体の一主面に金属回路用の金属板を、他の主面に放熱板用の金属板を接合した後、回路面にエッチングレジストを印刷する際、突き当てを用いて位置決めを行うが、寸法不良や変形不良により、セラミックス基板の長手・短手方向寸法及び形状に不具合があると回路パターン印刷ズレが生じ、後工程であるモジュール組立工程において、ワイヤーボンディング設置位置が不適当になり、電気的特性の劣化を生じさせる場合がある。

[0042] 本発明により製造されたセラミックス焼結体は、機械的特性に優れ、且つ、高い熱伝導率を有するので、厳しい使用条件下で用いられる回路基板、例えばパワーモジュール用回路基板に好適な材料である。本発明のセラミックス回路基板は、セラミックス焼結体を用いた基板の一主面に金属回路、他の主面に放熱板を形成してなるものである。

[0043] 本発明に係るセラミックス基板の厚みは特に限定されるものではなく、例えば、放熱特性を重視する場合は0.3〜1.0mm程度、高電圧下での絶縁耐圧を著しく高めたい場合は1〜3mm程度のものを用いるのが一般的である。

[0044] 本発明により製造されるセラミックス焼結体は、練土が2軸押出機により十分に混練されるため、バインダー等の塊のない均一な焼結体を得ることが出来る。セラミックス焼結体のボイド率は、3体積%以下であることが好ましい。ボイドが少ないと、高電圧下での絶縁特性が高くなる傾向がある。基板の放電特性を示す部分放電特性に関して、本願発明に係るセラミックス回路基板は、10pC以上の部分放電開始電圧を5kV以上にすることが可能である。

[0045] 金属回路と金属放熱板の材質はAl、Cu、又はAl-Cu合金であることが好ましい。これらは単層ないしはこれを一層として含むクラッド等の積層体の形態で用いることが可能である。中でも、AlはCuよりも降伏応力が小さいため塑性変形し易く、ヒートサイクル等の熱応力負荷が掛かった際に、セラミックス基板に加わる熱応力を大幅に低減することができる。そのため、AlはCuよりも、金属回路とセラミックス基板間に発生する水平クラックが発生しにくく、より高信頼性モジュールの作製が可能である。

[0046] 金属回路の厚みは、特に限定されるものではないが、電氣的及び熱的仕様からAl回路は0.1〜0.5mm、Cu回路は0.1〜0.5mmが一般的である。一方、放熱板は、半田付け時に反りを生じない厚みにすることが必要であり、例えば、Al放熱板は0.1〜0.5mm、Cu放熱板は0.1〜0.5mmが一般的である。

[0047] 本発明に係るセラミックス回路基板は、板状又は研削加工により板状に加工したセラミックス焼結体を基板とし、金属板を接合した後、エッチング等の手法により回路を形成させるか、或いは、予め形成した金属回路を、接合することにより製造することが可能である。板状のセラミックス焼結体又は研削加工により板状に加工したセラミックス焼結体と金属板又は金属回路との接合は、例えば、Al-Cu、Ag、Cu、又はAg-Cu合金と、Ti、Zr、Hf等の活性金属成分を含むロウ材を介在させ、不活性ガス又は真空雰囲気中で加熱する方法(活性金属法)により可能である。

実施例 1

[0048] 〈実験No. 1〜3〉

振動篩機を用いて予めオレイン酸で表面処理したAlN粉末100質量部、有機バインダー粉末3質量部、 Al_2O_3 2質量部、及び Y_2O_3 4質量部をボールトン混合機により乾式混合し、2軸押出機と1軸成形機を組合せた強混練型成形機の粉末供給口に、定量粉末フィーダー(供給バラツキ<1%)を用いて25.8kg/h供給した。また、AlN粉末100質量部に対して、有機液体バインダーが外割で7質量%、可塑剤が3質量部、離型剤が2質量部、イオン交換水が4質量部となるように、同押出機の液体供給口へ定量液体モノポンプ(供給バラツキ<1%)を用いて4.2kg/h供給した。2軸押出機は $D=46\text{mm}$ 、 $L=1840\text{mm}$ ($L/D=40$)、混練部は70体積% ($D=46\text{mm}$ 、 $L=1288\text{mm}$)、スクリー回転数100rpm、真空度は絶対圧力で666.6Paであった。また、2軸押出機と1軸成形機間の真空室の真空度は666.6Paであった。1軸成形機は $D=70\text{mm}$ 、 $L=700\text{mm}$ からなる装置を用い、スクリー回転速度60rpmの運転条件(吐出量30kg/h)にて、シートダイを用いて、巾100mm×厚み1.176mmの帯状のシート成形を行った。成形条件を表1に、成形されたシートの物性を表2に記す。

[0049] 同機により成形されたグリーンシートをベルト式乾燥機を用いて乾燥した後、金型

付プレス機により70mm(長さ)×50mm(幅)×1.174mm(厚み)の寸法に調整した。これを窒化ホウ素製の坩堝に充填して、常圧下、窒素雰囲気中にて600℃で4時間保持して脱脂した後、カーボンヒーター電気炉を用いて、絶対圧力0.1MPaの窒素雰囲気下で1800℃、2時間焼結してAlN焼結体を作製した。得られたAlN焼結体の物性を表3に示す。

[0050] 〈使用材料〉

- ・AlN粉末:D50の粉末粒径 $3.0\mu\text{m}$ 、純度99.9%、不純物含有量は鉄が40ppm及びシリコン100ppm。表面処理は、AlN粉末100質量部に対して、オレイン酸を1.5質量部添加した。
- ・ Al_2O_3 :アドマテックス社製、商品名「AO-500」、D50の粉末粒径 $1.0\mu\text{m}$ 、純度99.9%。
- ・ Y_2O_3 :信越化学工業株式会社製、商品名「Yttrium Oxide」、D50の粉末粒径 $1.0\mu\text{m}$ 、純度99.9%。
- ・有機液体バインダー:ユケン工業株式会社製、商品名「セランダー」、主成分アクリル酸エステル、ガラス転移温度 -20°C 。
- ・有機バインダー粉末:ダイセル化学工業株式会社製、商品名「CMCダイセル」、主成分カルボキシメチルセルロース。
- ・可塑剤:花王社製、商品名「エキセパール」、主成分グリセリン。
- ・離型剤:サンノプコ社製、商品名「ノプコセラLU-6418」、主成分ステアリン酸。
- ・アルミニウム板:三菱アルミニウム株式会社製、商品名「1085材」(対応JIS番号)。
- ・ろう合金箔:東洋精箔株式会社製、商品名「A2017R-H合金箔」(対応JIS番号)。
- ・UV硬化型レジストインク:互応化学工業株式会社製、商品名「PER-27B-6」。
- ・2軸押出機スクリーンのセラミックスコーティング材:アルミナ。

[0051] [表1]

実験 No	原料性状	2軸押出機混練部 体積率(%)	吐出量 kg/h	成型	スクリュウの 材質	スクリュウの 保持	連結部の 真空度 (Pa)	均圧缶 L/D	口金平坦部 長さ(mm)	邪魔板	備考
1	粉末と液体	70	30	* 1	セラミックスコーティング	有り	900	2	7	有り	実施例
2	粉末と液体	80	30	* 1	セラミックスコーティング	有り	900	2	7	有り	実施例
3	粉末と液体	30	30	* 1	セラミックスコーティング	有り	900	2	7	有り	実施例
4	混合粉 * 2	70	20	2軸押出機のみ	セラミックスコーティング	有り	—	—	—	—	比較例
5	粉末と液体	0	30	1軸成型機のみ	—	—	—	—	—	—	比較例
6	混合粉 * 2	0	30	1軸成型機のみ	—	—	—	—	—	—	比較例
7	粉末と液体	70	30	* 1	セラミックスコーティング	有り	900	2	7	有り	実施例
8	粉末と液体	70	30	* 1	セラミックスコーティング	有り	900	2	7	有り	比較例
9	粉末と液体	70	30	* 1	セラミックスコーティング	有り	900	2	7	有り	実施例
10	粉末と液体	70	30	* 1	セラミックスコーティング	有り	900	2	7	有り	比較例
11	粉末と液体	70	30	* 1	SUS440	有り	900	2	7	有り	実施例
12	粉末と液体	70	30	* 1	SS400	有り	900	2	7	有り	実施例
13	粉末と液体	70	30	* 1	セラミックスコーティング	なし	900	2	7	有り	実施例
14	粉末と液体	70	30	* 1	セラミックスコーティング	有り	大気圧	2	7	有り	実施例
15	粉末と液体	70	30	* 1	セラミックスコーティング	有り	1500	2	7	有り	実施例
16	粉末と液体	70	30	* 1	セラミックスコーティング	有り	900	0.8	7	有り	実施例
17	粉末と液体	70	30	* 1	セラミックスコーティング	有り	900	2	4	有り	実施例
18	粉末と液体	70	30	* 1	セラミックスコーティング	有り	900	2	7	有り	実施例
19	粉末と液体	70	30	* 1	セラミックスコーティング	有り	900	2	7	有り	実施例
20	粉末と液体	70	30	* 1	セラミックスコーティング	有り	900	2	7	なし	実施例

* 1 2軸押出機と1軸成型機の組み合わせ

* 2 予め、原料粉末、焼結助剤、有機バインダー粉末、有機バインダー液体、可塑剤、離型剤、イオン交換水を混合し、湿粉を調製して用いた。

実験No.	シート物性					
	ダイス部での 練土の粘度 Pa·sec	シート厚み (mm)	シート厚み パラッキR μm	シート密度 g/cm^3	吐出物温度 $^{\circ}\text{C}$	原料調整工程から シート化までの日数 day
1	2200	1.176	5	2.7	12	0.5
2	3500	1.176	7	2.7	12	0.5
3	3000	1.176	5	2.6	12	0.5
4	2500	1.176	10	2.4	12	8.0
5	15000	1.176	15	1.5	12	0.5
6	5000	1.176	10	2.0	12	8.0
7	2200	1.176	5	2.7	12	0.5
8	2200	0.5	3	2.7	12	0.5
9	2200	5	15	2.7	12	0.5
10	2200	15	35	2.4	14	0.5
11	2200	1.176	5	2.7	12	0.5
12	2200	1.176	5	2.7	12	0.5
13	2200	1.176	10	2.6	12	0.5
14	2200	1.176	5	2.5	12	0.5
15	2200	1.176	5	2.6	12	0.5
16	2200	1.176	15	2.7	12	0.5
17	2200	1.176	5	2.7	12	0.5
18	2200	1.176	4	2.7	5	0.5
19	2200	1.176	20	2.6	18	0.5
20	2200	1.176	20	2.7	12	0.5

[0053] [表3]

実験No.	焼結体特性									
	焼結体密度 g/cm3	収縮率 %	L方向変形率 %	W方向変形率 %	反り量 μm	ボイド率 %	熱伝導率 W/mK	抗折強度 MPa	部分放電 開始電圧 (kV)	
1	3.3	11	0.12	0.12	20	2	175	500	6.8	
2	3.3	11	0.12	0.12	40	2	170	450	6.6	
3	3.1	12	0.14	0.14	40	2	170	450	6.6	
4	3.1	11	0.17	0.17	80	2	160	400	6.0	
5	2.5	16	0.20	0.20	150	5	140	280	3.2	
6	3.0	12	0.15	0.15	40	5	150	350	3.4	
7	3.3	11	0.12	0.12	20	2	170	500	6.8	
8	3.3	11	0.12	0.12	20	2	170	500	7.0	
9	3.3	11	0.12	0.12	20	3	170	450	7.8	
10	3.2	11	0.12	0.12	20	8	160	400	8.9	
11	3.3	11	0.12	0.12	20	2	170	500	6.2	
12	3.3	11	0.12	0.12	20	2	170	500	6.0	
13	3.3	11	0.12	0.12	20	2	170	500	6.0	
14	3.0	12	0.15	0.15	20	6	170	250	2.8	
15	3.2	11	0.12	0.12	20	3	170	400	5.0	
16	3.3	11	0.12	0.12	20	2	170	450	6.6	
17	3.3	11	0.12	0.12	20	2	170	500	6.4	
18	3.3	11	0.12	0.12	20	2	170	500	7.2	
19	3.2	11	0.12	0.12	20	3	170	400	5.1	
20	3.3	11	0.12	0.12	20	2	170	500	6.6	

[0054] 得られたAlN焼結体の回路基板としての性能を評価するため、金属回路及び金属放熱板としてアルミニウム板を以下の方法にて接合し、回路パターンを形成した。

[0055] AlN焼結体の両面に70mm×50mm×0.2mmのロウ合金箔を貼付け、さらにその両面から70mm×50mm×0.2mmのアルミニウム板を挟み、それを10枚積層したものをカーボン治具にカーボンネジ締めにより設置した後、620℃で2時間保持してAlN焼結体とアルミニウム板を接合した。接合体の一主面には所定の形状の回路パターンを、もう一方の主面には放熱板パターンを形成させるべく、UV硬化型レジストインクをスクリーン印刷した後、UVランプを照射させてレジスト膜を硬化させた。次いで、レジスト塗布した部分以外を水酸化ナトリウム水溶液でエッチングした後、フッ化

アンモニウム水溶液にてレジスト剥離し、図4に記載したようにアルミニウム回路AIN基板を作製した。

[0056] 得られた回路基板の信頼性を評価するため熱履歴衝撃試験を実施し、1)パターン印刷ズレの有無、2)断面観察による回路面及び放熱板面とAIN基板間の接合クラック発生の有無、3)回路及び放熱板部分を溶解後、インクテストによる窒化アルミニウム基板のクラック発生の有無確認を確認した。結果を表3に示す。ここで、接合クラック発生の有無は、熱履歴衝撃試験を実施し、2000サイクル未満にて接合クラックが発生した場合を記号1、2000～3000サイクルにて接合クラックが発生した場合を記号2、3000サイクルでも接合クラックが発生しない場合を記号3とした。回路基板としての信頼性保証基準は記号2以上である。結果を表4に示す。

[0057] [表4]

実験No.	印刷パターンズレの有無	接合部クラックの有無	基板クラックの有無	備考
1	なし	3	なし	Al回路板、Al放熱板
2	なし	2	なし	Al回路板、Al放熱板
3	なし	3	なし	Al回路板、Al放熱板
4	有り	2	なし	Al回路板、Al放熱板
5	有り	1	有り	Al回路板、Al放熱板
6	なし	2	有り	Al回路板、Al放熱板
7	なし	2	なし	Cu回路板、Cu放熱板
8	なし	3	なし	Al回路板、Al放熱板
9	なし	3	なし	Al回路板、Al放熱板
10	なし	3	なし	Al回路板、Al放熱板
11	なし	3	なし	Al回路板、Al放熱板
12	なし	3	なし	Al回路板、Al放熱板
13	なし	3	なし	Al回路板、Al放熱板
14	なし	2	なし	Al回路板、Al放熱板
15	なし	3	なし	Al回路板、Al放熱板
16	なし	2	なし	Al回路板、Al放熱板
17	なし	2	なし	Al回路板、Al放熱板
18	なし	3	なし	Al回路板、Al放熱板
19	なし	2	なし	Al回路板、Al放熱板
20	なし	2	なし	Al回路板、Al放熱板

[0058] 〈測定方法〉

- ・熱履歴衝撃試験：(−25℃、10分→室温、10分→125℃、10分→室温、10分)を1サイクルとして、3000サイクルのヒートサイクルに供試体を晒す試験。
- ・練土粘度：降下式フローテスターにより、せん断応力0.3MPa時の粘度を測定した

。

・シート厚みバラツキR:マイクロメーターを用いて、シート幅方向の他端から5mm間隔で厚みを測定し、(3)式より求めた。

[0059] [数3]

$$R = \max(y_i) - \min(y_i) \quad \text{式(3)}$$

ここで、 y_i はi回測定したときのシート厚みである。

[0060] ・シート密度:金型プレス後の成形体を用いて(4)式より求めた。

[0061] [数4]

$$\rho_{\text{sheet}} = \frac{W_{\text{sheet}} - W_{\text{liqued}}}{l \times w \times t} \quad \text{式(4)}$$

ここで、 W_{sheet} は成形体重量、 W_{liqued} は100℃、1時間乾燥後の含水除去した成形体重量、 l はシート長手方向距離、 w は短手方向距離、 t 成形体厚み。

[0062] ・焼結体の収縮率:(5)式より求めた。

[0063] [数5]

$$S(\%) = \frac{l_{\text{sheet}}}{l_{\text{sintered body}}} \times 100 \quad \text{式(5)}$$

ここで、 S はL方向の収縮率(%)、 l_{sheet} は成形体の長手方向長さ、 $l_{\text{sintered body}}$ は焼結体の長手方向長さ。

[0064] シート化までの日数内訳を以下に記す。粉末と液体の調製に要する日数:0.5日、粉末と液体の混合調製に要する日数:0.5日、混合品の寝かせに要する日数:3日、混合品の混練に要する日数:1日、混練品の寝かせに要する日数:3日とした。

[0065] ・焼結体のL方向及びW方向変形率:(6)式より求めた。

[0066] [数6]

$$l_{\text{yieldrate}}(\%) = \frac{(l_{\text{center}} - l_{\text{end}})}{l_{\text{center}}} \times 100 \quad \text{式(6)}$$

ここで、 $l_{\text{yeilded rate}}$ は長手方向の変形量であり、+符号の場合は長手方向中央部が端部より長く、-符号の場合は長手方向中央部が端部より短い、 l_{center} は長手方向中央部の長さ、 l_{end} は長手方向端部の長さ。W方向変形率は同式を用いて算出する。

[0067] ・焼結体密度:アルキメデス法により(7)式から算出した。

[0068] [数7]

$$\rho = \frac{W_1 \rho_E}{(W_2 - W_3)} \quad \text{式(7)}$$

ここで、 r は嵩密度、 W_1 は空気中での焼結体の質量、 W_2 は焼結体の開気孔にブタノールが含浸したときの空気中における焼結体の質量、 W_3 はブタノール中での焼結体質量、 r_E は密度測定時(25℃)のブタノールの密度:0.8048g/cm³である。

[0069] ・焼結体の抗折強度:下部スパン30mm、クロスヘッド速度0.5mm/分の条件にて3点曲げ試験(JIS R1601)を行い、その破壊荷重を(8)式により求めた(n=10)。

[0070] [数8]

$$\sigma_f = \frac{3P_f L}{2bh^2} \quad \text{式(8)}$$

ここで、 σ_f は抗折強度、 P_f は破壊荷重、 b は試験片の幅、 h は試験片の厚さ、 L は下部スパン長さである。

焼結体の熱伝導率:AlN基板表面にカーボンスプレー処理を施し、レーザーフラッシュ法にて測定した。

焼結体の反り量:株式会社東京精密社製触針式輪郭測定器「CONTOURECORD 1600D」を用いて測定した。

[0071] ここで、シート強度は、幅10mm、長さ40mmのシートを、JIS K6251の引っ張り試験方法により測定した。

[0072] 焼結体のボイド率は、セラミックス焼結体を厚みの半分まで研磨し、電子顕微鏡にて直径15μm以上のボイドについて、その直径を測定し、(9)式により求めた。(n=3)

[0073] [数9]

$$\varepsilon_v = \frac{\sum 4/3 \pi r^3}{At} \times 100 \quad \text{式(9)}$$

- [0074] 部分放電開始電圧は、作製した回路基板を絶縁油（住友3M社製「フロリナートFC-77」）に浸漬して、1kV／分のスピードで電圧を印可したとき、部分放電電荷量が10pCを超した時の電圧を、部分放電開始電圧とした。（n=5）

実施例 2

- [0075] 〈実験No. 4～6〉

2軸押出機と1軸成形機を組合せた強混練型成形機の代わりに、2軸押し出し機又は1軸成形機のみを用いたこと以外は、実施例1と同様に行った。結果を表1～4に示す。

実施例 3

- [0076] 〈実験No. 7〉

金属回路と金属放熱板に銅板を用い、下記の方法で接合及び回路パターン形成したこと以外は、実施例1と同様に行った。結果を表1～4に示す。

- [0077] Ag85質量%、Cu10質量%、Zr2質量%、TiH3質量%からなる混合粉末と、外割で30質量%テルピネオールからなるペースト状混合液をAlN焼結体の両面に塗布し、その両面に3インチ×2インチ×0.02インチ厚の無酸素銅板を貼付け、それを14枚積層したものをカーボン治具にカーボンネジ締めにより設置を行った後、850℃で2時間保持させてAlN焼結体を銅板で挟んだ接合体を作製した。接合体の一主面には所定の形状の回路パターンを、もう一方の主面には放熱板パターンを形成させるべく、UV硬化型レジストインクをスクリーン印刷した後、UVランプを照射させてレジスト膜を硬化させた。次いで、レジスト塗布した部分以外を塩化第2銅溶液でエッチングした後、フッ化アンモニウム水溶液にてレジスト剥離し、銅回路AlN基板を作製した。

- [0078] 〈使用材料〉

・無酸素銅板：住友金属鉱山伸銅株式会社製、商品名『3100系』（対応JIS番号）。

実施例 4

- [0079] 〈実験No. 8～20〉

シート厚み、2軸押出機のスクリーンの材質、2軸押出機のスクリーンの保持構造、2軸押出機と1軸成形機連結部分の真空度、均圧缶のL/D、口金の平坦部長さ、及び邪魔板の有無を変えたこと以外は、実施例1と同様に行った。結果を表1〜4に示す。

[0080] 本発明の実施例は、シート密度が $2.5\text{g}/\text{cm}^3$ 以上、AlN焼結体の収縮率が12%以下、及び熱伝導率が $170\text{W}/\text{mK}$ 以上であり、熱履歴衝撃試験後に、接合クラック及び基板クラックが発生せず、回路基板として高い信頼性が得られることが判る。

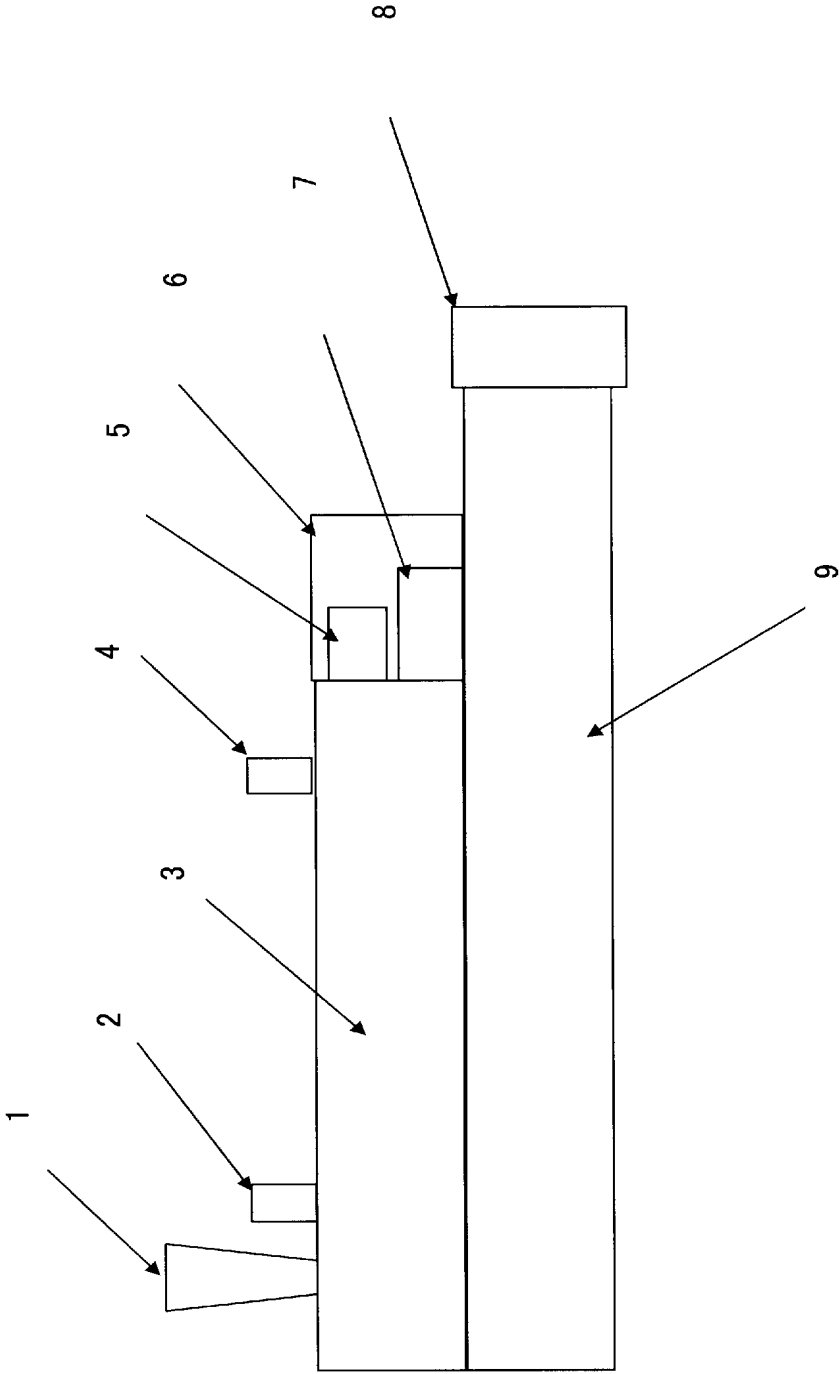
なお、本出願の優先権主張の基礎となる日本特許願2004-079787号(2004年3月19日に日本特許庁に出願)の全明細書の内容をここに引用し、本発明の明細書の開示として、取り入れるものである。

請求の範囲

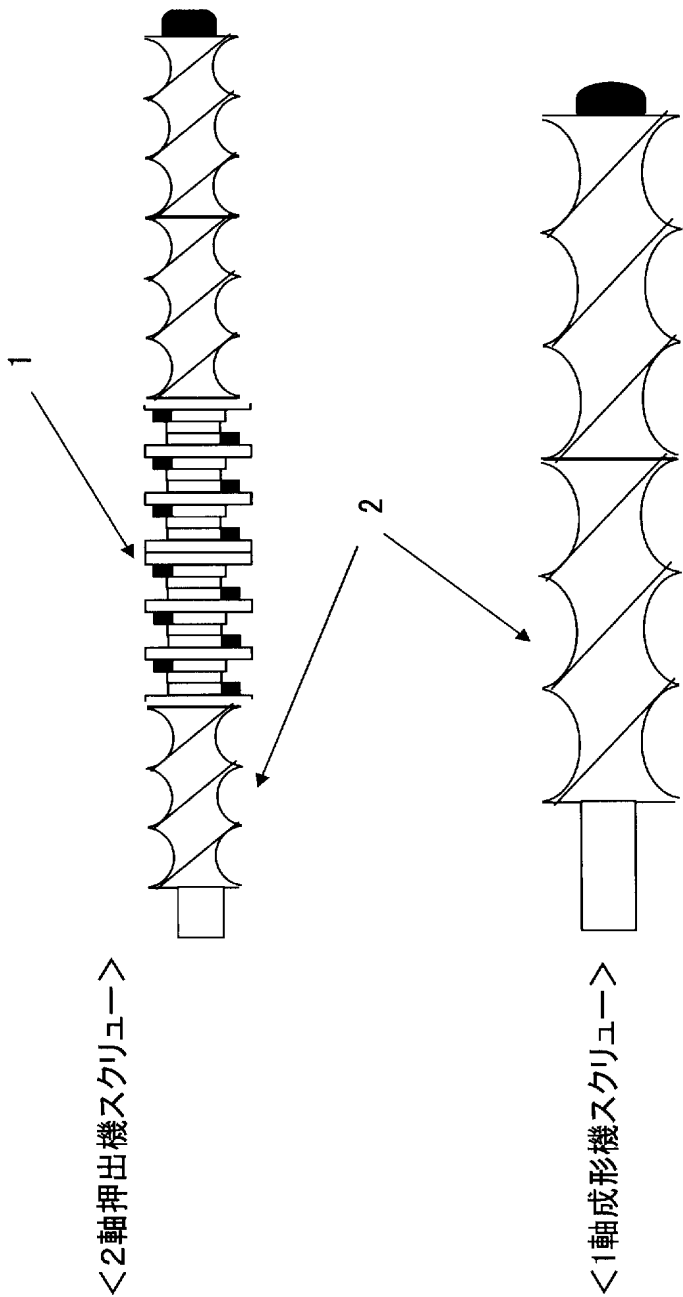
- [1] 2軸押出機の吐出口と1軸成形機の原料供給口を連結させた押出成形機を用いて、厚みが1〜10mmのセラミックシートを成形することを特徴とするセラミックシートの製造方法。
- [2] 2軸押出機の吐出口と1軸成形機の原料供給口の連結部分を減圧することを特徴とする請求項1に記載のセラミックシートの製造方法。
- [3] 2軸押出機の吐出口と1軸成形機の原料供給口の連結部分の真空度が、1332. 2 Pa以下であることを特徴とする請求項2に記載のセラミックシートの製造方法。
- [4] 2軸押出機及び1軸成形機から吐出される吐出物の温度が5〜15℃であることを特徴とする請求項1〜3のいずれか一項に記載のセラミックシートの製造方法。
- [5] 2軸押出機の混練部が、2軸押出機の30〜70体積%を占めることを特徴とする請求項1〜4のいずれか一項に記載のセラミックシートの製造方法。
- [6] 2軸押出機の混練部が、耐摩耗性材料から構成されていることを特徴とする請求項5に記載のセラミックシートの製造方法。
- [7] 2軸押出機のスクリーウの中間部及び／又は先端部にスクリーウを保持する構造を有することを特徴とする請求項1〜6のいずれか一項に記載のセラミックシートの製造方法。
- [8] 1軸成形機に缶の直径以上の長さを有する均圧缶を設置したことを特徴とする請求項1〜7のいずれか一項に記載のセラミックシートの製造方法。
- [9] 1軸成形機の吐出口に長さ5mm以上の平坦部を有する口金を設置したことを特徴とする請求項1〜8のいずれか一項に記載のセラミックシートの製造方法。
- [10] 1軸成形機の吐出口の口金部と均圧缶の間に邪魔板を設置したことを特徴とする請求項1〜9のいずれか一項に記載のセラミックシートの製造方法。
- [11] (a)セラミックス粉末、焼結助剤及び有機バインダー粉末からなる混合粉末を2軸押出機の粉末供給部より供給し、(b)液状の有機バインダー、離型剤及び可塑剤からなる液体を2軸押出機の液体供給部より供給し、(c)2軸押出機内の混練部にて混合粉末と液体を混練し、(d)シートダイスを取付けた1軸押出機によりシート成形を行うことを特徴とする請求項1〜10のいずれか一項に記載のセラミックシートの製造方法。

- [12] セラミックス粉末が窒化物セラミックス、焼結助剤粉末が希土類酸化物、有機バインダー粉末がセルロース系又はアクリル系バインダー、液状の有機バインダーがアクリル系バインダーであることを特徴とする請求項11に記載のセラミックシートの製造方法。
- [13] 窒化物セラミックスが窒化アルミニウムであり、シートの見掛け密度が $2.5\text{g}/\text{cm}^3$ 以上であることを特徴とする請求項12に記載のセラミックシートの製造方法。
- [14] シート強度が 1.47MPa 以上であることを特徴とする請求項1〜13のいずれか一項に記載のセラミックシートの製造方法。
- [15] 請求項1〜14のいずれか一項に記載の方法により製造されたセラミックシートに、脱脂及び焼結処理を施してなるセラミックス基板。
- [16] ボイド率が3体積%以下であることを特徴とする請求項15に記載のセラミックス基板。
- [17] 請求項15又は16に記載のセラミックス基板の一主面に金属回路を形成し、他の一主面に放熱板を接合してなるモジュール用セラミックス回路基板。
- [18] 10pC 以上の部分放電開始電圧が 5kV 以上であることを特徴とする請求項17に記載のモジュール用セラミックス回路基板。
- [19] 請求項17又は18に記載のセラミックス回路基板を用いてなるモジュール。

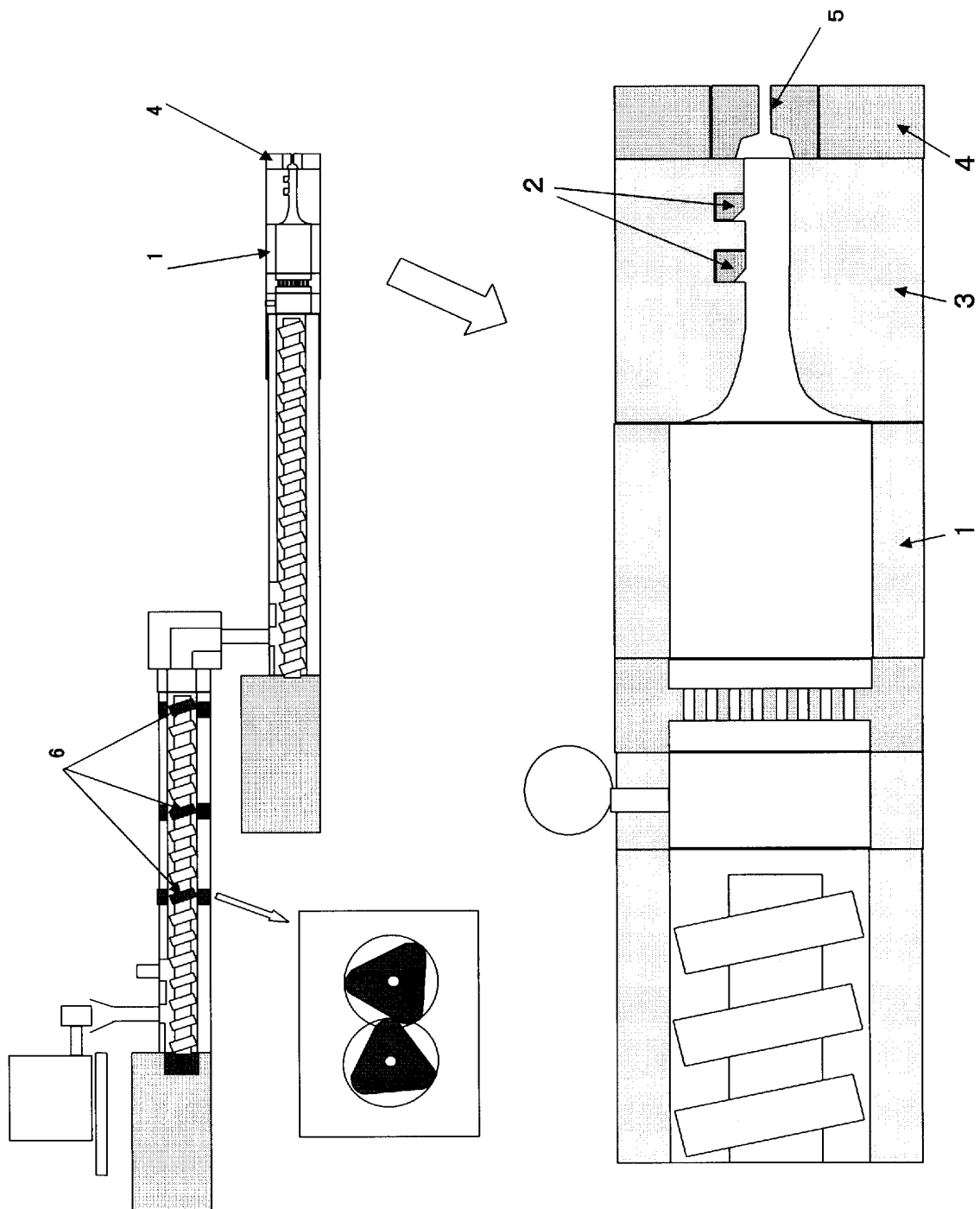
[図1]



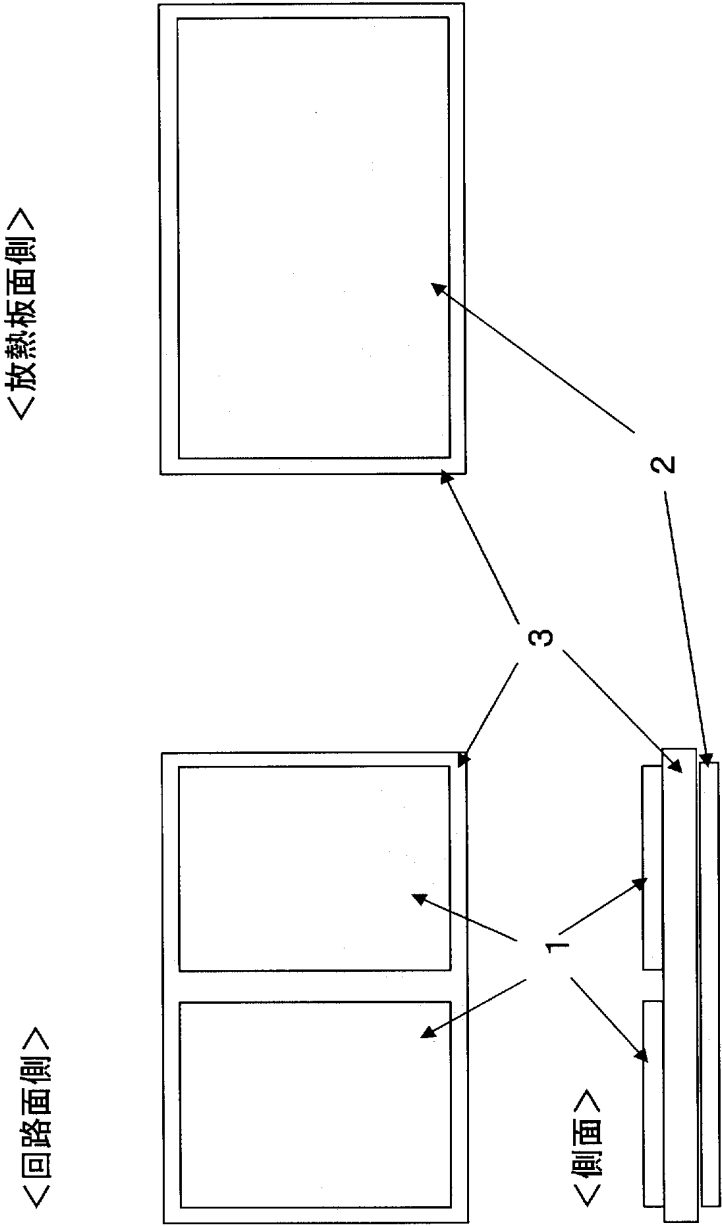
[図2]



[図3]



[図4]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2005/004815

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl.⁷ B28B3/22, H01L23/12, H01L23/15, H01L23/36, H05K1/03, H05K7/20

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl.⁷ B28B3/20-3/26, C04B35/622

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2005
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2005	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2005

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 5-220803 A (Corning Inc.), 31 August, 1993 (31.08.93), Claims 10, 26; page 5, right column, lines 12 to 21 & EP 545056 A1 Claim 5; column 7, lines 9 to 23 & US 5213737 A	1-19
A	JP 2002-79509 A (Denso Corp.), 19 March, 2002 (19.03.02), Drawings & US 2002/14710 A1 drawings	1-19

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
23 June, 2005 (23.06.05)Date of mailing of the international search report
12 July, 2005 (12.07.05)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2005/004815

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2002-144313 A (Denso Corp.), 21 May, 2002 (21.05.02), Drawings & US 2002/36948 A1 drawings	1-19

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl.⁷ B28B3/22, H01L23/12, H01L23/15, H01L23/36, H05K1/03, H05K7/20

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl.⁷ B28B3/20-3/26, C04B35/622

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2005年
日本国実用新案登録公報	1996-2005年
日本国登録実用新案公報	1994-2005年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP 5-220803 A (コーニング インコーポレイテッド) 1993.08.31, 請求項 10, 26, 第 5 頁右欄第 12-21 行目 & EP 545056 A1, 請求項 5, 第 7 欄第 9-23 行目 & US 5213737 A	1-19
A	JP 2002-79509 A (株式会社デンソー) 2002.03.19, 図面 & US 2002/14710 A1, 図面	1-19
A	JP 2002-144313 A (株式会社デンソー) 2002.05.21, 図面 & US 2002/36948 A1, 図面	1-19

C 欄の続きにも文献が列挙されている。

パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の 1 以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

23.06.2005

国際調査報告の発送日

12.7.2005

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目 4 番 3 号

特許庁審査官 (権限のある職員)

永田 史泰

4 T

3029

電話番号 03-3581-1101 内線 3465